

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
**Image Problem Mailbox.**



19 BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENTAMT

12 Offenlegungsschrift  
10 DE 43 09 731 A 1

51 Int. Cl.<sup>5</sup>:  
C 07 C 69/06  
C 07 C 87/38

21 Aktenzeichen: P 43 09 731.6  
22 Anmeldetag: 25. 3. 93  
43 Offenlegungstag: 29. 9. 94

DE 43 09 731 A 1

71 Anmelder:  
BASF AG, 67063 Ludwigshafen, DE

72 Erfinder:  
Zehner, Peter, Dr., 67071 Ludwigshafen, DE; Bittins,  
Klaus, Dr., 67227 Frankenthal, DE; Haarde, Wilhelm,  
Dr., 67269 Gruenstadt, DE; Eiden, Ulrich, Dr., 67227  
Frankenthal, DE; Wolff, Dietrich, Dr., 68723  
Plankstadt, DE; Herr, Manfred, 67157 Wachenheim,  
DE; Hupfer, Leopold, Dr., 67136 Friedelsheim, DE

54 Verfahren zur Herstellung von Methylformiat

57 Herstellung von Methylformiat durch Umsetzung von Kohlenmonoxid und Methanol unter erhöhtem Druck und erhöhter Temperatur in Gegenwart eines Alkalimetallmethylats, indem man  
A) die Ausgangsstoffe in einer Mischzone vermischt, teilweise abregulieren läßt, die Reaktionslösung mit CO sättigt und  
B) die Umsetzung in einer oder mehreren Nachreaktionszonen ohne Zufuhr weiterer Ausgangsverbindungen zu Ende führt.

DE 43 09 731 A 1

$$\text{CO} + \text{MeOH} \longrightarrow \text{HC} \begin{array}{c} \text{O} \\ \parallel \end{array} \text{OMe}$$

Die Aufarbeitung der erfindungsgemäß erhaltenen

Reaktionslösung erfolgt in an sich bekannter Weise, wobei sich im allgemeinen an ein Entspannung und Restgasabtrennung eine Destillation der flüssigen Komponenten mit eventueller Rückführung des so erhaltenen Methanols anschließt. Methylformiat kann dann in bekannter Weise zu Ameisensäure hydrolysiert werden.

Das erfindungsgemäße Verfahren bietet die Möglichkeit, im Reaktionsgemisch gelöstes CO zu einem solchen Grad umzusetzen, daß eine Rückführung in die Reaktion nicht mehr lohnend ist oder daß sie sich erübrigt. Weiterhin bietet das Verfahren den Vorteil, bei kleinen Reaktorabmessungen eine hohe Raum-Zeit-Ausbeute zu erreichen.

#### Beispiel

In einem kontinuierlich betriebenen Reaktor gemäß Figur wurden bei einem Gesamtdruck von 57 bar und bei 80°C Methanol und reines CO im molaren Verhältnis von 3,6 : 1 in Gegenwart von 1 Gew.-% Natriummethylat, bezogen auf Methanol, vermischt. Bei einer Verweilzeit von 45 Minuten betrug der Methylformiat-Gewichtsanteil 40%. Der CO-Umsatz betrug 92%. Durch eine Nachreaktionsphase von 2 Minuten stieg der CO-Umsatz auf 95,5%, entsprechend halbierte sich fast der CO-Verlust durch im Reaktionsgemisch gelöstes CO.

#### Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Methylformiat durch Umsetzung von Kohlenmonoxid und Methanol unter erhöhtem Druck und erhöhter Temperatur in Gegenwart eines Alkalimetallmethylats, dadurch gekennzeichnet, daß man
  - A) die Ausgangsstoffe in einer Mischzone vermischt, teilweise abreagieren läßt, die Reaktionslösung mit CO sättigt und
  - B) die Umsetzung in einer oder mehreren Nachreaktionszonen ohne Zufuhr weiterer Ausgangsverbindungen zu Ende führt.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man bei einem Druck von 40 bis 100 bar arbeitet.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß man bei einer Temperatur von 60 bis 100°C arbeitet.
4. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß man Natriummethylat als Katalysator verwendet.
5. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß die Katalysatorkonzentration in der Mischzone 0,4 bis 1,5 Gew.-%, bezogen auf eingesetztes Methanol beträgt.

Hierzu 1 Seite(n) Zeichnungen

